

放電励起 ArF エキシマレーザーのシミュレーションモデル

Simulation Model of a Discharge Pumped ArF Excimer Laser

古橋秀夫、内田悦行

Hideo FURUHASHI, Yoshiyuki UCHIDA

Abstract A simulation model of a discharge pumped ArF excimer laser was developed based on the Boltzmann transport equation, rate equations and the circuit equation. Uniform plasma was assumed. It is one-dimensional model. Time histories of the laser output power, number densities of species in the plasma, currents and voltages were calculated numerically. The results were compared with the experimental results by spectroscopic methods. The peak- electron density, discharge voltage, and particle number densities agreed well, but their temporal behaviors differed.

1. はじめに

エキシマレーザーは紫外域で発振する短パルス高出力レーザーである。現在半導体の製造プロセスにおいて中心的な役割を果たすと共に、加工、分光光源として広く利用され始めている。

しかしながら、現在使われているエキシマレーザーは未だに効率、寿命等に問題があり、ランニングコストのかかるレーザーである。そのため、より高効率、長寿命にすることが望まれている。

これまで、エキシマレーザーの研究は、経験に基づいた装置の改良により行われてきた。しかしながらそのような方法での高性能化はもはや限界にあり、励起機構に基づくより深い研究が必要とされている。

そこで我々はこれまでに、分光学的手法によりエキシマレーザー内部の各種粒子の密度を測定し、励起機構に関して検討してきた¹⁻⁵⁾。

本研究では、放電励起エキシマレーザーの中でもっとも短い波長で発振が得られる放電励起 ArF エキシマレーザーのシミュレーションモデルを構築し、実際のレーザー装置での測定結果と比較することにより、本モデルの有効性について検証したので報告する。

2. 放電励起 ArF エキシマレーザー装置

今回のシミュレーションでは、実験室内で使用してい

る放電励起 ArF エキシマレーザーをモデル化した。図1にその装置の励起回路図を、図2に装置の断面図を示す。

この装置は容量移行型のUV予備電離方式と呼ばれる励起方法が使用されている。抵抗 R_1 を通してコンデンサ C_1 に充電された電荷は、サイラトロンスイッチが閉じられることにより、放電管へと流れ込む。放電管内にはコンデンサ C_2 があり、微小ギャップ P_0-P_1 を通して電荷が充電される。この時微小ギャップにおいて生ずるスパークにより紫外光が発生し、放電管内のガスが電離される。この予備電離によって発生した電荷が種となり、主放電が起こる。コンデンサ C_2 を放電管内に置くことにより、放電時の回路インダクタンスを小さくし、高速大電流の放電を行うことが出来る。

コンデンサ C_1 、 C_2 はドアノブ型コンデンサで、 $C_1=1.7\text{nF} \times 40=68.0\text{nF}$ 、 $C_2=1.7\text{nF} \times 24=40.8\text{nF}$ である抵抗としては $R_1=300\Omega$ 、 $R_2=2\text{k}\Omega$ が使われている。放電管はステンレス製で、700mm×160mm×80mm、5800cm³の容量がある。予備電離は72本のステンレス製ピンによって行われる。主放電電極はERNST形のステンレス電極で、長さ64cm、幅0.8cm、間隔1.8cmである。レーザー発振させる際には片方に100%反射ミラーを置き、出力用窓との間で共振器を構成した。共振器長は70cmである。

3. ガスレーザーのシミュレーション手法

放電励起ガスレーザーのシミュレーション方法には、モンテカルロシミュレーション、ボルツマン方程式によるシミュレーション、連続の式によるシミュレーション

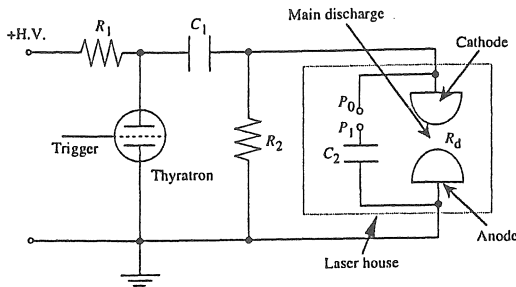


図1 放電励起ArFエキシマレーザ装置の励起回路

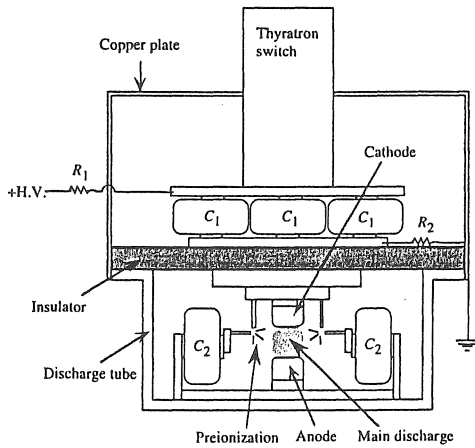


図2 放電励起ArFエキシマレーザ装置の断面図

等いくつかの方法がある⁶⁻⁸⁾。今回作成したシミュレーションモデルは、ボルツマン方程式を基本とした。その構成を図3に示す。以下に、各部について述べる。

3.1 回路方程式

今、簡単化のために図4のような放電励起ガスレーザの励起回路を考える。放電部を可変抵抗 R_d とモデル化すると、回路方程式は以下ようになる。

$$L \frac{d^2 I}{dt^2} = (R + R_d) \frac{dI}{dt} + \frac{I}{C} \quad (1)$$

この時、 C 、 R 、 L は定数であるが、放電インピーダンス R_d は時間と共に変化するため、数値解析が必要となる。 R_d は以下の式により求めることが出来る。

$$R_d = \frac{V_g}{I} = \frac{Ed}{e\mu N_e A} = \frac{d}{e\mu N_e A} \quad (2)$$

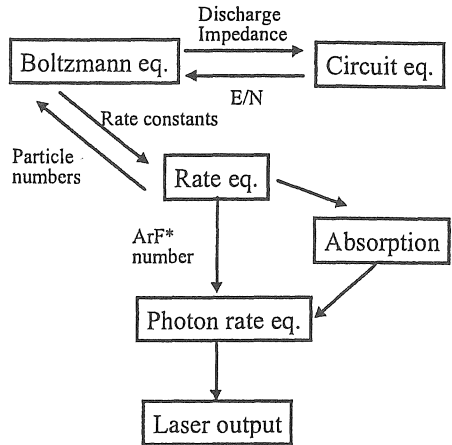


図3 シミュレーションモデルの構成

μ は電子の移動度、 d は放電長、 A は放電断面積、 N_e は電子密度である。

3.2 ボルツマン方程式

エキシマレーザの放電においては、電子のエネルギー分布はマクスル分布より外れることが分かっている^{7,8)}。従って、定常状態のマクスル方程式を用いてその電子エネルギー分布を求めた。定常状態のマクスル方程式は、以下のようなものである。

$$\begin{aligned} & \frac{1}{3} \left(\frac{E}{N} \right)^2 \frac{d}{du} \left(\frac{u}{Q_j} \frac{df}{du} \right) + \frac{2m}{M} \frac{d}{du} (u^2 Q_j f) + \frac{2mkT}{Me} \frac{d}{du} \left(u^2 Q_j \frac{df}{du} \right) \\ & + \sum_j (u+u_j) f(u+u_j) Q_j(u+u_j) - u f(u) \sum_j Q_j(u) \\ & + \sum_j (u-u_j) f(u-u_j) Q_j(u-u_j) - u f(u) \sum_j Q_j(u) \end{aligned} \quad (3)$$

ここで、 u は電子エネルギー、 E は電界、 N は全粒子数、 e は電荷、 m は電子の質量をあらわす。また、 k はボルツマン定数、 T はガス温度である。

M は、全粒子の平均粒子質量で、混合気体中では以下のように計算される。

$$M = \sum_n M^n G^n \quad (4)$$

ここで、 M^n は n 番目の粒子の質量。 G^n はその粒子の全粒子数に対する割合を示す。

Q_j はモル平均弾性衝突断面積で、以下の式により計算される。

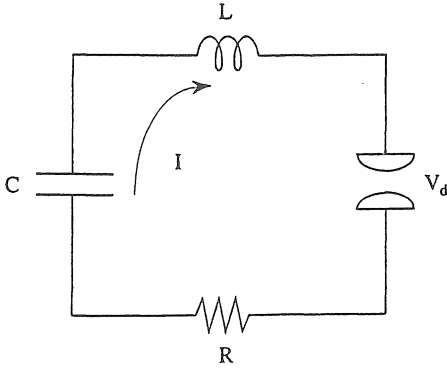


図4 LCR 励起回路

$$Q_1(u) = \sum_n Q_m^n(u) G^n \quad (5)$$

ここで、 $Q_m^n(u)$ はエネルギー u を持った電子と粒子 n との衝突時の全電子衝突断面積である。また、 Q_2 は逆モル平均弾性衝突断面積で、以下の式で計算される。

$$Q_2(u) = \sum_n \frac{MQ_m^n(u)G^n}{M^n} \quad (6)$$

$Q_j(u)$ は電子と粒子 j との非弾性衝突断面積、 $Q_{-j}(u)$ は第 2 種非弾性衝突断面積を示す。第 2 種非弾性衝突断面積は以下の式で計算される。

$$Q_{-j}(u) = \frac{u+u_j}{u} Q_j(u+u_j) \quad (7)$$

電子エネルギー分布関数 f は $\int_0^\infty u^{\frac{1}{2}} f(u) du = 1$ となるように規格化を行った。

電子エネルギー分布がわかると、各種スウォームパラメータを求めることができる。電子の移動度 μ は以下の式で求まる。

$$\mu = \frac{1}{3N} \left(\frac{2e}{m} \right)^{\frac{1}{2}} \int_0^\infty \left(\frac{u}{Q_1} \right) \frac{\partial f}{\partial u} du \quad (8)$$

また、電子速度 v は以下の式で表される。

$$v = \left(\frac{2eu}{m} \right)^{\frac{1}{2}} \quad (9)$$

従って、レート定数は

$$k_j = (Q_j v) = \left(\frac{2e}{m} \right)^{\frac{1}{2}} \int_0^\infty Q_j(u) u f(u) du \quad (10)$$

と計算される。

3.3 反応レート方程式

放電気体内では、各粒子は他の粒子や電子などと衝突することによりその粒子数が時間と共に変化する。そのため、基底状態・励起状態・イオン化状態の各種原子密度・分子密度や電子密度を求めることが必要である。

各種粒子密度の時間変化は、全生成過程と全消滅過程の差であらわされる。

$$\frac{dN_j}{dt} = \sum_j F_j - \sum_k D_k \quad (11)$$

ここで、 N_j は粒子密度、 F_j は j 粒子からの生成項、 D_k は k 粒子への消滅項を示す。

2 体衝突による生成 ($A+B \rightarrow C+D$) の場合には、 C 、 D 粒子は生成項

$$F = k[A][B] \quad (12)$$

を持つことに成る。ここで k はレート定数、 $[A]$ 、 $[B]$ は各粒子密度である。一方、 A 、 B 粒子は消滅項

$$F = k[C][D] \quad (13)$$

を持つことに成る。

3.4 フォトンレート方程式

レーザー内では、自然放出及び誘導放出により光子が生成される。一方、吸収及び出力ミラーからの取り出しやサイド光としての損失により減少する。光子の増減は、以下の式であらわすことができる。

$$\frac{dN_p}{dt} = \frac{KN_n}{\tau} + \frac{cN_p}{l_c} \left[l_g N_m \sigma_m + \frac{1}{2} \ln(R) - l_g \sum_i N_i \sigma_i + \ln(1-L) \right] \quad (14)$$

ここで、 N_n はレーザー上順位の粒子数、 K は自然放出項の内レーザー発振にかかわる光子の割合、 τ は自然放出寿命、 l_c は共振器長、 l_g は放電長、 σ_m は誘導放出断面積、 R は出力ミラーの反射率、 N_i は吸収体の密度、 σ_i は吸収体の吸収断面積、 L はシングルパスあたりの光ロスを示す。

4. 放電励起 ArF エキシマレーザーのシミュレーション

本シミュレーションでは、Runge-Kutta 法を用いて、回路方程式及びレート方程式を数值的に解いた。時間ステップは 2×10^{-13} s 間隔である。ボルツマン方程式は、放電電圧が 5% 変化するごとに Runge-Kutta 法を用いて計算された。そのあいだは、電子エネルギー分布等のプラズマパラメータの変化は無いものとして簡略化した。さらに、レート定数及び放電インピーダンスはボルツマン方程式が呼び出されるごとに再計算された。

空間的に一様なプラズマを考え、0次元で計算した。プラズマの幅は、分光学的手法により求めた電子密度の空間分布のデータより4mmと仮定した。

表2 反応式と反応レート定数

4.1 励起回路

図1の回路図を元に、図5のような等価回路を用いた。C₁=68.0nF、C₂=40.8nFである。また、R₁、R₂、L₁、L₂、L₃は実際に実験で求めた電流、電圧波形より推測した。R₁=0.5Ω、R₂=0.0Ω、L₁=200nH、L₂=1.0nH、L₃=2.0nHである。回路方程式は表1ようになる。この連立微分方程式を解き、放電部にかかる電界強度を以下の式により求めた。

$$E_g = \frac{V_g}{d} = \frac{R_d I_g}{d} \tag{15}$$

4.2 反応プロセス

この研究では放電ガスとしてAr/F₂/Heの混合ガスが使われた。この場合、主な放電生成粒子として電子、Ar*、Ar⁺、Ar₂⁺、He*、He⁺、F⁺、ArF*、Fがレーザー発振に関係してくる。それらの反応式及びレート定数を表2に示す。電子-電子衝突の項に付いては、その寄与が少ないことから⁷⁾、計算の高速化を考えて本シミュレーションでは除外した。Ar及びHeの電子衝突による励起・イオン化のレート定数及びF₂分子の電子衝突によるイオン化のレート定数は、ボルツマン方程式により求めた電子エ

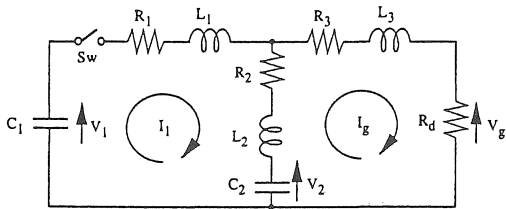


図5 励起回路の等価回路

Reaction	Rate Constant	Ref.
Electron Reaction		
Ar+e → Ar*+e	<i>k_{exa}</i>	
Ar+e → Ar ⁺ +2e	<i>k_{ia}</i>	
Ar*+e → Ar ⁺ +2e	<i>k_{sia}</i>	
He+e → He*+e	<i>k_{exh}</i>	
He+e → He ⁺ +2e	<i>k_{ih}</i>	
He*+e → He ⁺ +2e	<i>k_{sih}</i>	
F ₂ +e → F+F	<i>k_a</i>	
F ₂ +e → 2F+e	3.0 × 10 ⁻¹⁰ cm ³ /s	(9)
F+e → F ⁺	1.0 × 10 ⁻¹² cm ³ /s	(9)
Neutral Reaction		
Ar ⁺ +2Ar → Ar ₂ ⁺ +Ar+e	2.5 × 10 ⁻³¹ cm ⁶ /s	(10)
Ar*+F ₂ → ArF*+F	8.0 × 10 ⁻¹⁰ cm ³ /s	(11)
Ar ⁺ +F → ArF*	1.0 × 10 ⁻⁶ cm ³ /s	(12)
Ar ₂ ⁺ +F ⁺ → ArF*+Ar	1.0 × 10 ⁻⁶ cm ³ /s	(13)
Ar*+Ar* → Ar ⁺ +Ar+e	1.0 × 10 ⁻⁹ cm ³ /s	(13)
He*+Ar → Ar ⁺ +He+e	7.5 × 10 ⁻¹¹ cm ³ /s	(12)
He*+Ar+He → Ar ⁺ +2He+e	2.2 × 10 ⁻³⁰ cm ⁶ /s	(14)
Emission and Quenching		
ArF*+F ₂ → Ar+3F	1.2 × 10 ⁻⁹ cm ³ /s	(15)
ArF*+Ar ⁺ He → F+2Ar+He	3 × 10 ⁻³¹ cm ⁶ /s	(15)
ArF*+2He → F+Ar+2He	3 × 10 ⁻³² cm ⁶ /s	(15)
ArF* → Ar+F+hv	4.2ns	(16)
ArF*+hv → Ar+F+2hv	2.75 × 10 ⁻¹⁶ cm ²	(11)
Absorption		
F+hv → F+e	5.5 × 10 ⁻¹⁸ cm ²	(17)
Ar*+hv → Ar ⁺ +e	4.0 × 10 ⁻²⁰ cm ²	(18)
He*+hv → He ⁺ +e	1.14 × 10 ⁻¹⁸ cm ²	(19)
Ar ₂ ⁺ +hv → Ar ⁺ +Ar	2.73 × 10 ⁻²⁰ cm ²	(20)
F ₂ +hv → 2F	1.5 × 10 ⁻²¹ cm ²	(21)

表1 回路方程式

$$\begin{aligned} \frac{dI_g}{dt} &= \frac{-\{L_1(R_2 + R_3 + R_d) + L_2(R_3 + R_d)\}I_g + (L_1R_2 - L_2R_1)I_1 + L_2V_1 + L_1V_2}{L_1L_2 + L_2L_3 + L_3L_1} \\ \frac{dI_1}{dt} &= \frac{-(L_2R_1 - L_3R_1 - L_3R_2)I_1 + (L_3R_2 + L_2R_3 + L_2R_d)I_g + (L_2 - L_3)V_1 + L_3V_2}{L_1L_2 + L_2L_3 + L_3L_1} \\ \frac{dV_1}{dt} &= -\frac{I_1}{C_1} \\ \frac{dV_2}{dt} &= -\frac{I_1 - I_g}{C_2} \end{aligned}$$

エネルギー分布を元に断面積データより求めた。各断面積データを図6に示す。 q_m は弾性衝突断面積、 q_i はイオン化断面積、 q_t は全衝突断面積、 q_{ex1} は振動励起断面積、 q_{ex2} は付着断面積、 q_{ex3} は電子励起断面積を示す。電子励起単位として、以下の準位を考慮した。

$$\begin{aligned} \text{Ar} &: 4S_{1/2}(q_{ex1}) \quad 4S_{3/2}(q_{ex2}) \\ \text{He} &: 2s^1P^0(q_{ex1}) \quad 2p^3P_2^0(q_{ex2}) \quad 2s^1S_0(q_{ex3}) \\ &\quad 2s^3S_1(q_{ex4}) \quad 3p^1P^0(q_{ex5}) \\ \text{F}_2 &: C^1\Sigma_u^+(q_{ex1}) \quad H^1\Pi_u(q_{ex2}) \quad a^3\Pi_u(q_{ex3}) \end{aligned}$$

その他粒子のレート定数については、電子エネルギー分布に依らないものとして簡略化した。レート定数のデータについては文献を参考にした。

初期電子密度は $5 \times 10^8 \text{cm}^{-3}$ 、初期のF₂密度は $1 \times 10^{10} \text{cm}^{-3}$ 、予備電離による初期電子の生成レートを $1 \times 10^{16} \text{s}^{-1} \text{cm}^{-3}$ と仮定した。

また、フォトンレート方程式においては、自然放出項の内レーザー発振にかかわるフォトンの割合 $k=1.8 \times 10^{-5}$ 、共振器長 $l_c=70 \text{cm}$ 、放電長 $l_d=64 \text{cm}$ 、出力ミラーの反射率 $R=8\%$ 、シングルパスあたりの光ロス $L=8\%$ とした。

5. 計算結果

図7に、各種粒子密度の計算結果を示す。また、図8に実験で得られた放電電圧、電子密度、F₂イオン密度、He励起状態密度の実測値¹⁻⁶⁾との比較を示す。時間変化に多少の違いが見られるが、ピーク電圧・密度については良

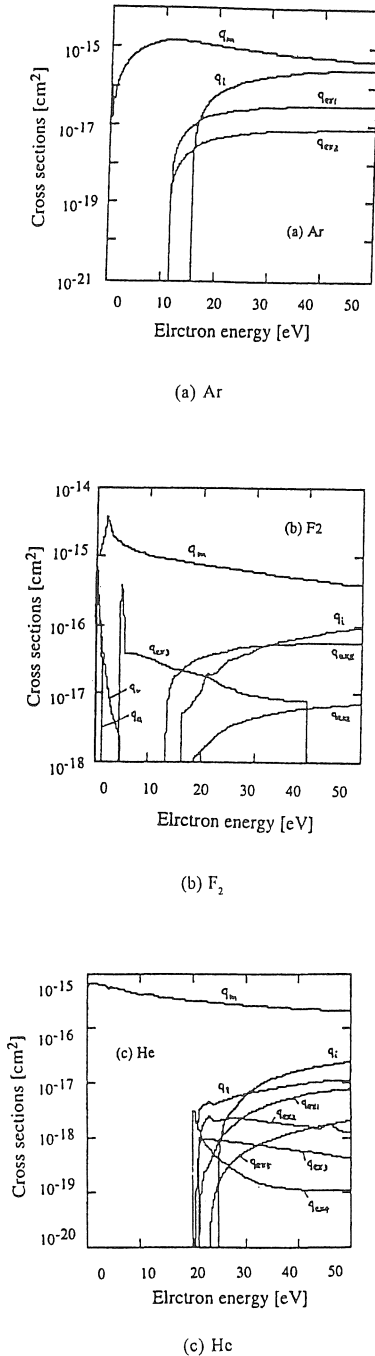


図6 Ar, F₂, Heの断面積データ²²⁻³⁹⁾

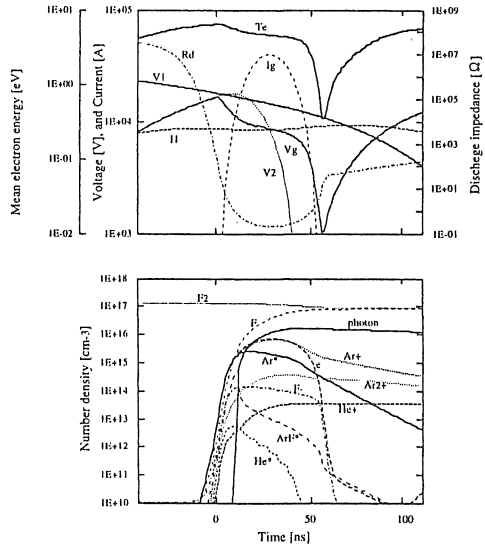


図7 シミュレーション結果

一致がみられる。時間変化等の差については、空間的なプラズマの不均一性、断面積やレート定数の誤差、反応式の不足、あるいは実験データの測定精度の問題等が考えられる。

まとめ

ボルツマン方程式をベースとして、レート方程式、回路方程式を組み合わせることにより、放電励起ArFエキシマレーザーのシミュレーションモデルを作成した。放電電圧波形や各種粒子密度について実際の測定結果と比較した結果、ある程度の精度でこのシミュレーションが有効なものであることが確認された。よりシミュレーション精度を高めるために、今後は空間的に他次元化したモデルを考え、反応式を増やしたり、より正確な断面積・レート定数の収集が必要であると思われる。

参考文献

1) M. Hiramatsu, H. Furuhashi and T. Goto, J. Appl. Phys.

60, 1946-1948 (1986).
 2) H. Furuhashi, M. Ichikawa, E. Fuwa and T. Goto, IEEE J. Quantum Electron. Vol.29, No.6. 1520-1525 (1993).
 3) S. Nagai, H. Furuhashi, Y. Uchida, J. Yamada, A. Kono and T. Goto, . Appl. Phys. Vol.77, No.7. 2906-2911 (1995).
 4) Shinji Nagai, Masahiro Sakai, Hideo Furuhashi, Akihiro Kono, Toshio Goto, Yoshiyuki Uchida, IEEE Journal of Quantum Electronics, Vol. 34, No.1, pp.40-46 (1998).
 5) S. Nagai, H. Furuhashi, A. Kono, Y. Uchida and T. Goto, IEEE J. Quantum Electron. Vol. 34, No.6, pp942-947 (1998).
 6) H. Akashi, et al, J. Phys. D, Vol. 27 pp1097-1106 (1994).
 7) A. E. Green and C. A. Brau, IEEE J. Quantum Electrom. Vol. 14, p.951(1978).
 8) T. H. Jhonson, L. J. Palumbo and A. M. Hunter II, IEEE J. Quantum Electron Vol. 15, p.289 (1979).
 9) T. H. Johnson and A. M. Hunter, II, J. Appl. Phys., Vol. 51, p.2406 (1980)
 10) D. Smith and P. R. Cromey, J. Phys. B Vol.1, p.638 (1968).
 11) J. E. Velazco, J. H. Kolts and D. W. Sester, J. Chem. Phys.

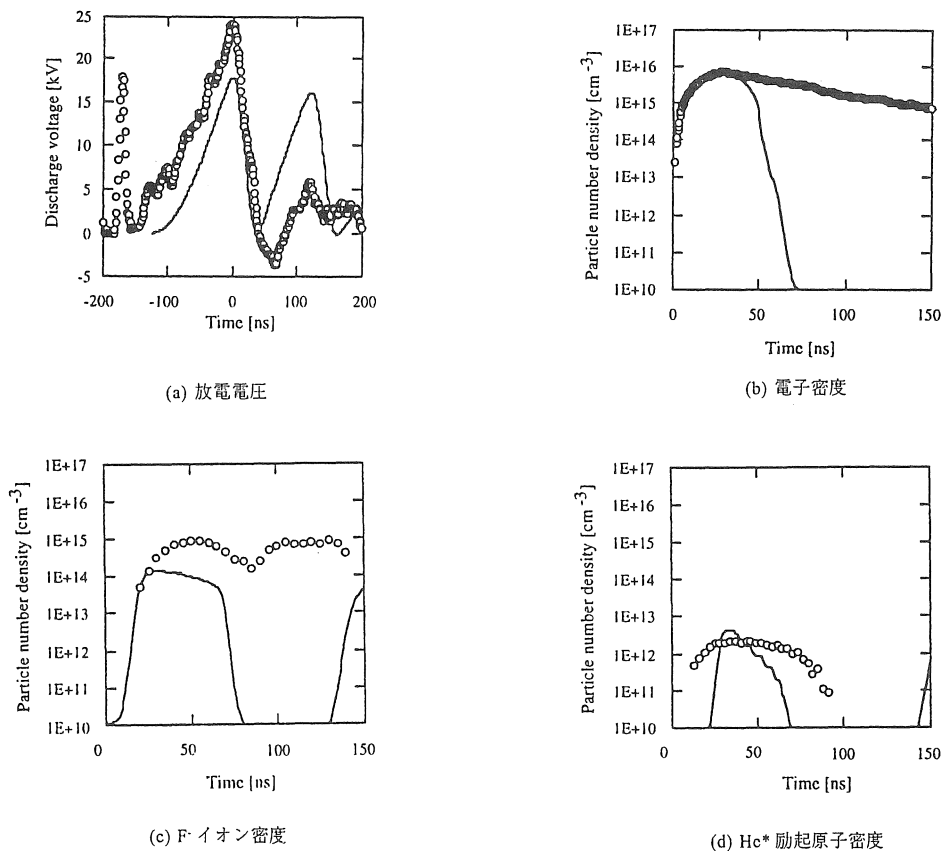


図8 シミュレーション結果と実測値の比較
 実線：シミュレーション結果、白丸：実測値

- Vol.65, p.3468 (1976).
- 12) F. W. Lee and C. B. Collins, J. Chem Phys., Vol.65, p.5189 (1976).
 - 13) M. Ohwa and M. Obara, J. Appl. Phys., Vol.63, p.1306 (1988).
 - 14) C. B. Collins and F. W. Lee, J. Chem. Phys., Vol.70, p.1275 (1979).
 - 15) M. Rokni, J. H. Jacob, J. A. Mangano and R. Brochu, Appl. Phys. Lett., Vol.31, p.79 (1977).
 - 16) N. Boewering, R. Sauerbrey and H. Langhoff, J. Chem. Phys., Vol.76, p.3524 (1982).
 - 17) A. Mandl, Phys. Rev. A, Vol.3, p.251 (1971).
 - 18) C. Duzy, J. C. Hsia, H. Hyman, J. H. Jacob, D. Klimek, H. Parks and D. Trainor, Final Tech. Rep. NTIS HC A06/MF A01 (Avco Everett Res. lab., Inc., Everett, MA, 1980).
 - 19) D. W. Norcross, J. Phys. B: Atom. Molcc. Phys., Vol.4, p.652 (1971).
 - 20) W. R. Wadt, J. Chem. Phys., Vol.73, p.3915 (1980).
 - 21) D. W. Trainor and J. H. Jacob, Appl. Phys. Lett., Vol.37, p.675 (1980).
 - 22) L. S. Forest and A. V. Phelps, Phys. Rev., Vol.136, p.A1538 (1964).
 - 23) N. J. Mason and W. R. Newell, J. Phys. B: At. Mol. Phys., Vol.20, p.1357 (1987).
 - 24) J. D. Jobe and R. M. St. John, Phys. Rev., Vol.164, p.117 (1967).
 - 25) E. Volaty and K. Masek, Czech. J. Phys. B, Vol.22, p.776 (1972).
 - 26) R. C. Wetzel, F. A. Baiocchi, T. R. Hayes and R. S. Freund, Phys. Rev. A., Vol.35, p.559 (1987).
 - 27) C. Sol, F. Devos and J-C. Gauthier, Phys. Rev. A, Vol.12 p.502 (1975).
 - 28) W. R. L. Thomas, J. Phys. B: Atom. Molec. Phys., Vol.2, p.551 (1969).
 - 29) L. R. Peterson and J. E. Allen Jr., J. Chem. phys., Vol.56, p.6068 (1971).
 - 30) Y. Sakai, H. Tagashira and S. Sakamoto, J. Phys. D., Vol.10, p.1035 (1977).
 - 31) T. Makabe and T. Mori, j. Phys. D, Vol.10, p.387 (1980).
 - 32) M. Hayashi and T. Miura, J. Appl. Phys., Vol.54, p.4879 (1983).
 - 33) R. J. Hall, J. Chem Phys., Vol.68, p.1803 (1977).
 - 34) A. U. Hazi, A. E. Orcl and T. N. Rescigno, Phys. Rev. Lett., Vol.46, p.918 (1981).
 - 35) F. A. Srevie and M. J. Vasile, J. Chem. phys., Vol.74, p.5106 (1981).
 - 36) A. U. Hazi, Phys. Rev. A, Vol.23, p.2232 (1981).
 - 37) A. W. Fliflet and V. McKoy, Phys. Rev. A, Vol.21, p.788 (1980).
 - 38) B. I. Schneider and P. J. Hay, Phys. Rev. A, Vol.13, p.2049 (1976).
 - 39) T. N. Rescigno, C. F. Bender, C. W. McCurdy and V. McKoy, J. Phys. B: Atom. Molec. Phys., Vol.9, p.2141 (1976).

(受理 平成11年3月20日)